

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

DIALOG(R)File 352:Derwent WPI
(c) 2004 Thomson Derwent. All rts. reserv.

014857856 **Image available**

WPI Acc No: 2002-678562/200273

XRPX Acc No: N02-536590

Light-emitting element for use as back light for full-color display device, has thermoplastic sealing layer for sealing multilayered light-emission element comprising organic layer

Patent Assignee: FUJI PHOTO FILM CO LTD (FUJF)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 2002246172	A	20020830	JP 200137501	A	20010214	200273 B

Priority Applications (No Type Date): JP 200137501 A 20010214

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 2002246172	A		9 H05B-033/04	

Abstract (Basic): JP 2002246172 A

NOVELTY - A thermoplastic sealing layer (9) seals a multilayered light-emission element (7) including an organic layer (3), back-electrode layers (5,6). A thermoplastic substrate (1) and the thermoplastic sealing layer are fused in the periphery of the multilayered light-emission element.

DETAILED DESCRIPTION - An INDEPENDENT CLAIM is included for light-emitting element manufacturing method.

USE - For use as back light for full-color display device, and as illumination light source for printer.

ADVANTAGE - Provides excellent light-emission brightness, luminous efficiency and durability by using the thermoplastic sealing element for sealing the organic layer.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows a sectional view of the light-emitting element.

Thermoplastic substrate (1)

Organic layer (3)

Back-electrode layers (5,6)

Light-emission element (7)

Thermoplastic sealing layer (9)

pp: 9 DwgNo 1/3

Title Terms: LIGHT; EMIT; ELEMENT; BACK; LIGHT; FULL; COLOUR; DISPLAY;
DEVICE; THERMOPLASTIC; SEAL; LAYER; SEAL; MULTILAYER; LIGHT; EMIT;
ELEMENT; COMPRISE; ORGANIC; LAYER

Derwent Class: U14

International Patent Class (Main): H05B-033/04

International Patent Class (Additional): H05B-033/02; H05B-033/10;
H05B-033/14

File Segment: EPI

DIALOG(R)File 347:JAPIO

(c) 2004 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

07377672

LIGHT-EMITTING ELEMENT AND MANUFACTURING METHOD FOR THE SAME

PUB. NO.: 2002-246172 [JP 2002246172 A]

PUBLISHED: August 30, 2002 (20020830)

INVENTOR(s): MISHIMA MASAYUKI

APPLICANT(s): FUJI PHOTO FILM CO LTD

APPL. NO.: 2001-037501 [JP 200137501]

FILED: February 14, 2001 (20010214)

INTL CLASS: H05B-033/04; H05B-033/02; H05B-033/10; H05B-033/14

ABSTRACT

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a light-emitting element and a manufacturing method of it having superior lighting luminance, luminous efficiency, and durability and available effectively for full-color display, backlight, surface light source, such as an illumination light source, and a light source array and the like for a printer and the like.

SOLUTION: This light-emitting element is constructed by arranging a transparent electrode, a light-emitting laminate, and a thermoplastic sealing member on a thermoplastic base board, and the light-emitting laminate is constructed by layering one or more organic compound layers, including a light-emitting layer and a back electrode, while by means of the thermoplastic sealing member, the organic compound layer is sealed and shut off from the outside air. The thermoplastic base board and the thermoplastic sealing member are fused together in the circumference part of the light-emitting laminate.

COPYRIGHT: (C)2002, JPO

?

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-246172
(P 2 0 0 2 - 2 4 6 1 7 2 A)
(43) 公開日 平成14年 8 月30日 (2002. 8. 30)

(51) Int. Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/04		H05B 33/04	3K007
33/02		33/02	
33/10		33/10	
33/14		33/14	A

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2001-37501 (P 2001-37501)	(71) 出願人	000005201 富士写真フイルム株式会社 神奈川県南足柄市中沼210番地
(22) 出願日	平成13年 2 月14日 (2001. 2. 14)	(72) 発明者	三島 雅之 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 フイルム株式会社内
		(74) 代理人	100080012 弁理士 高石 橘馬
		F ターム (参考)	3K007 AB02 AB03 AB11 AB18 BB01 BB05 CA06 CB01 DA01 DB03 EB00 FA02

(54) 【発明の名称】 発光素子及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 発光輝度、発光効率及び耐久性に優れ、フルカラーディスプレイ、バックライト、照明光源等の面光源、プリンター等の光源アレイ等に有効に利用できる発光素子、並びにその製造方法を提供する。

【解決手段】 熱可塑性基板上に透明電極、発光層を含む一層以上の有機化合物層及び背面電極を積層してなる発光積層体、並びに有機化合物層を封止し外部の空気を遮断する熱可塑性封止部材を有し、熱可塑性基板と熱可塑性封止部材とが発光積層体の周辺部で融着されていることを特徴とする発光素子。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 熱可塑性基板上に透明電極、発光層を含む一層以上の有機化合物層及び背面電極を積層してなる発光積層体、並びに前記有機化合物層を封止し外部の空気を遮断する熱可塑性封止部材を有し、前記熱可塑性基板と前記熱可塑性封止部材とが前記発光積層体の周辺部で融着されていることを特徴とする発光素子。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の発光素子において、前記熱可塑性基板及び前記熱可塑性封止部材の軟化点がそれぞれ 200℃ 以下であることを特徴とする発光素子。

【請求項 3】 熱可塑性基板上に透明電極、発光層を含む一層以上の有機化合物層及び背面電極を積層してなる発光積層体、並びに前記有機化合物層を封止し外部の空気を遮断する熱可塑性封止部材を有する発光素子を製造する方法であって、前記熱可塑性基板と前記熱可塑性封止部材とを前記発光積層体の周辺部で融着することを特徴とする発光素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】 本発明は、フルカラーディスプレイ、バックライト、照明光源等の面光源、プリンター等の光源アレイ等に有効に利用できる発光素子、及びその製造方法に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】 有機物質を使用した有機発光素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子や書き込み光源アレイとしての用途が有望視されており、近年活発な研究開発が進められている。一般に有機発光素子は発光層を含む有機化合物層及び該有機化合物層を挟んだ一対の対向電極から構成される。このような有機発光素子に電圧を印加すると、有機化合物層に陰極から電子が注入され陽極から正孔が注入される。この電子と正孔が発光層において再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出することにより発光が得られる。

【 0 0 0 3 】 従来の有機発光素子は、駆動電圧が高く発光輝度及び発光効率が低いという問題を有している。近年、この問題を解決するための技術が種々報告されており、例えば有機化合物の蒸着により形成した有機薄膜を有する有機発光素子が知られている（アプライド フィジクス レターズ、51 巻、913 頁、1987 年）。この有機発光素子は電子輸送材料からなる電子輸送層と正孔輸送材料からなる正孔輸送層の積層二層構造を有し、従来の単層型素子に比べて大幅に向上した発光特性を示す。正孔輸送材料としては低分子アミン化合物、電子輸送材料兼発光材料としては 8-キノリノールのアルミニウム錯体（Alq）を用いており、発光色は緑色である。蒸着有機薄膜を有する有機発光素子はその後も数多く報告されている（マクロモレキュラー シンポジウム、125 巻、1 頁、1997 年に記載の参考文献参照）。

【 0 0 0 4 】 一方、有機発光素子の有機化合物層を形成する際には、蒸着法、スパッタ法、CVD 法、PVD 法、溶剤を用いた塗布法等の様々な方法が使用できるが、これらの方法の中で、製造工程の簡略化、製造コストの低減、加工性の改善、バックライトや照明光源等のフレキシブルな大面積素子への応用等の観点からは塗布法等の湿式製膜法が有利である。高分子化合物を湿式製膜法により製膜した有機発光素子は既に幾つか報告されており、該高分子化合物としては緑色発光を示すポリパラフェニレンビニレン（ネイチャー、347 巻、539 頁、1990 年）、赤橙色発光を示すポリ（3-アルキルチオフェン）（ジャパニーズ ジャーナル オブ アプライドフィジクス、30 巻、L1938 頁、1991 年）、青色発光を示すポリアルキルフルオレン（ジャパニーズ ジャーナル オブ アプライド フィジクス、30 巻、L1941 頁、1991 年）等が提案されている。また、特開平 2-223188 号は低分子化合物をバインダー樹脂に分散させ、湿式塗布により製膜する方法を報告している。

【 0 0 0 5 】 しかしながら、上記のような乾式法又は湿式法による発光素子は、いずれもフレキシブルなプラスチック基板を用いるとガラス基板を用いた場合に比べて耐久性が大きく劣るという欠点があり、実用化が困難とされてきた。

【 0 0 0 6 】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、発光輝度、発光効率及び耐久性に優れ、フルカラーディスプレイ、バックライト、照明光源等の面光源、プリンター等の光源アレイ等に有効に利用できる発光素子、並びにその製造方法を提供することである。

【 0 0 0 7 】

【課題を解決するための手段】 上記課題に鑑み鋭意研究の結果、本発明者は、熱可塑性基板上に電極及び有機化合物層を設け、該熱可塑性基板に熱可塑性封止部材を融着させて有機化合物層を封止することによって、発光特性及び耐久性に優れた発光素子が得られることを発見し、本発明に想到した。

【 0 0 0 8 】 即ち、本発明の発光素子は、熱可塑性基板上に透明電極、発光層を含む一層以上の有機化合物層及び背面電極を積層してなる発光積層体、並びに有機化合物層を封止し外部の空気を遮断する熱可塑性封止部材を有し、熱可塑性基板と熱可塑性封止部材とが発光積層体の周辺部で融着されていることを特徴とする。本発明の発光素子は発光輝度、発光効率及び耐久性に優れており、さらにフレキシブルな素子として好適に使用でき、フルカラーディスプレイ、バックライト、照明光源等の面光源、プリンター等の光源アレイ等に有効に利用できる。本発明の発光素子において、熱可塑性基板及び熱可塑性封止部材の軟化点はそれぞれ 200℃ 以下であるのが好ましい。

【 0 0 0 9 】 また本発明の製造方法は、熱可塑性基板上

に透明電極、発光層を含む一層以上の有機化合物層及び背面電極を積層してなる発光積層体、並びに有機化合物層を封止し外部の空気を遮断する熱可塑性封止部材を有する発光素子を製造する方法であって、熱可塑性基板と熱可塑性封止部材とを発光積層体の周辺部で融着することを特徴とする。

【0010】

【発明の実施の形態】本発明の発光素子は熱可塑性基板上に透明電極、発光層を含む一層以上の有機化合物層及び背面電極を積層してなる発光積層体、並びに有機化合物層を封止し外部の空気を遮断する熱可塑性封止部材を有する。熱可塑性基板と熱可塑性封止部材は、発光積層体の周辺部で融着される。この発光素子は本発明の製造方法によって製造できる。

【0011】本発明で使用する熱可塑性基板は、水分を透過させない材料又は水分透過率が極めて低い材料からなるのが好ましい。該材料は有機化合物層から発せられる光を散乱又は減衰させないことが好ましい。また、熱可塑性基板は熱可塑性封止部材と融着されるため、その軟化点は200℃以下であることが好ましく、180℃以下であることがより好ましい。

【0012】熱可塑性基板をなす材料の具体例としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステルや、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、アリルジグリコールカーボネート、ポリシクロオレフィン、ノルボルネン樹脂、ポリ(クロロトリフルオロエチレン)等の有機材料等が挙げられる。中でも、耐熱性、寸法安定性、耐溶剤性、電気絶縁性及び加工性に優れ、且つ低通気性及び低吸湿性である有機材料が好ましく使用でき、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリカーボネート及びポリ(クロロトリフルオロエチレン)が特に好ましい。透明電極が酸化インジウムスズ(ITO)からなる場合には、ITOとの格子定数の差が小さい材料を用いるのが好ましい。

【0013】熱可塑性基板の形状、構造、大きさ等は発光素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。形状は板状とするのが一般的である。構造は単層構造であっても積層構造であってもよい。熱可塑性基板は単一の部材で形成しても、2以上の部材で形成してもよい。また、熱可塑性基板は無色透明であっても有色透明であってもよいが、発光層から発せられる光を散乱又は減衰させることがない点で無色透明であるのが好ましい。

【0014】熱可塑性基板の電極側の面、電極と反対側の面又はその両方に透湿防止層(ガスバリア層)を設けるのが好ましい。透湿防止層をなす材料としては窒化ケイ素、酸化ケイ素等の無機物を用いるのが好ましい。透湿防止層は高周波スパッタリング法等により形成でき

る。また、熱可塑性基板には必要に応じてハードコート層やアンダーコート層を設けてもよい。

【0015】本発明で用いる熱可塑性封止部材をなす材料の例としては、上記熱可塑性基板に使用できる材料の例と同様のものが挙げられる。熱可塑性封止部材は上記熱可塑性基板と同じ材料からなるものであっても、異なる材料からなるものであってもよい。熱可塑性封止部材の軟化点は80~200℃であるのが好ましく、80~180℃であるのがより好ましい。熱可塑性封止部材には透湿防止層、ハードコート層、アンダーコート層等を形成することができる。

【0016】本発明においては、熱可塑性基板上に蒸着法等の乾式法又は塗布法等の湿式法により設置した発光積層体を、熱可塑性封止部材により封止する。封止は、発光積層体の周辺部で熱可塑性基板と熱可塑性封止部材とを融着させることにより行う。融着方法は熱融着法、超音波融着法、レーザー融着法等が使用できる。このような融着法を用いることにより、従来の封止接着剤を用いた場合に比べ、封止能力を高め、発光素子の耐久性を向上させることができる。融着温度は好ましくは100~200℃、より好ましくは100~180℃である。

【0017】図1~3は各々、本発明の発光素子の一実施形態を示す概略断面図である。図1~3に示す各発光素子は、熱可塑性基板1の上に透明電極2、有機化合物層3及び背面電極4を積層してなる発光積層体7、並びに有機化合物層3を封止する熱可塑性封止部材9を有する。これらの実施形態においては、熱可塑性封止部材9を融着部8で熱可塑性基板1に融着し、発光積層体7に設置する。本発明では、図1に示すように熱可塑性封止部材9を背面電極4側のみに設置しても、図2及び3に示すように発光積層体7全体を熱可塑性封止部材9で覆ってもよく、有機化合物層3を封止でき外部の空気を遮断することができれば、熱可塑性封止部材9の形状、大きさ、厚さ等は特に限定されない。

【0018】図1~3中、熱可塑性封止部材9と発光積層体7との間には空間10が存在してもよい。空間10には水分吸収剤、不活性液体等を挿入してよい。水分吸収剤は特に限定されず、具体例としては酸化バリウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、五酸化リン、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化銅、フッ化セシウム、フッ化ニオブ、臭化カルシウム、臭化バナジウム、モレキュラーシーブ、ゼオライト、酸化マグネシウム等が挙げられる。不活性液体としてはパラフィン類、流動パラフィン類、フッ素系溶剤(パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等)、塩素系溶剤、シリコンオイル類等が使用可能である。

【0019】本発明の発光素子において、発光積層体の構成は、熱可塑性基板上に透明電極/発光層/背面電

極、透明電極／発光層／電子輸送層／背面電極、透明電極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／背面電極、透明電極／正孔輸送層／発光層／背面電極、透明電極／発光層／電子輸送層／電子注入層／背面電極、透明電極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／背面電極等をこの順に積層した構成、これらを逆に積層した構成等であってよい。各層に用いる化合物の具体例については、例えば「月刊ディスプレイ」1998年10月号別冊の「有機ELディスプレイ」（テクノタイムズ社）等に記載されている。

【0020】有機化合物層の形成位置は特に制限されず、発光素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができるが、透明電極又は背面電極上に形成するのが好ましい。このとき有機化合物層は透明電極又は背面電極の全面又は一部に形成してよい。有機化合物層の形状、大きさ及び厚みも目的に応じて適宜選択することができる。

【0021】有機化合物層は乾式製膜法又は湿式製膜法により製膜してよいが、湿式製膜法を用いると有機化合物層を容易に大面積化することができ、高輝度で発光効率に優れた発光素子が低コストで効率よく得られ、好ましい。乾式製膜法としては蒸着法、スパッタ法等が使用でき、湿式製膜法としてはディッピング法、スピンコート法、ディップコート法、キャスト法、ダイコート法、ロールコート法、バーコート法、グラビアコート法等が使用可能である。これらの製膜法は有機化合物層の材料に応じて適宜選択できる。湿式製膜法により製膜した場合は製膜した後に乾燥してよい。乾燥は塗布層が損傷しないように温度、圧力等の条件を選択して行う。

【0022】上記湿式製膜法で用いる塗布液は通常、有機化合物層の材料と、それを溶解又は分散するための溶剤からなる。溶剤は特に限定されず、有機化合物層に用いる材料に応じて選択すればよい。溶剤の具体例としては、ハロゲン系溶剤（クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロメタン、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン等）、ケトン系溶剤（アセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、*n*-プロピルメチルケトン、シクロヘキサノン等）、芳香族系溶剤（ベンゼン、トルエン、キシレン等）、エステル系溶剤（酢酸エチル、酢酸 *n*-プロピル、酢酸 *n*-ブチル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸エチル、 γ -ブチロラクトン、炭酸ジエチル等）、エーテル系溶剤（テトラヒドロフラン、ジオキサン等）、アミド系溶剤（ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等）、ジメチルスルホキシド、水等が挙げられる。なお、塗布液中の溶剤に対する固形分量は特に制限はなく、塗布液の粘度も製膜方法に応じて任意に選択することができる。

【0023】有機化合物層を湿式製膜法で塗布形成する場合、該有機化合物層にはバインダー樹脂を添加することができる。この場合、ポリマーバインダーとしては、

ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリビニルブチラール、ポリビニルアセタール等が使用可能である。これらは1種単独で使用してもよい

10 し、2種以上を併用してもよい。

【0024】本発明の発光素子は通常、その透明電極と背面電極との間に2～40ボルト程度の直流電圧（交流成分を含んでもよい）又は直流電流を印加すると発光する。また、本発明の発光素子を駆動する際には、特開平2-148687号、同6-301355号、同5-29080号、同7-134558号、同8-234685号、同8-241047号、米国特許5828429号、同6023308号、日本特許第2784615号等に記載の駆動方法を利用することができる。以下、本発明で用いる発光積層体をなす各層について詳述するが、本発明はそれらにより限定されない。

【0025】(A)透明電極

通常、透明電極は有機化合物層に正孔を供給する陽極としての機能を有するが、陰極として機能させることもでき、この場合背面電極を陽極として機能させる。以下、透明電極を陽極とする場合について説明する。

【0026】透明電極の形状、構造、大きさ等は特に制限されず、発光素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。透明電極を形成する材料としては、金属、合金、金属酸化物、有機導電性化合物、これらの混合物等を用いることができ、好ましくは仕事関数が4.0eV以上の材料を用いる。具体例としては、アンチモンをドープした酸化スズ（ATO）、フッ素をドープした酸化スズ（FTO）、半導性金属酸化物（酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）、酸化亜鉛インジウム（IZO）等）、金属（金、銀、クロム、ニッケル等）、これら金属と導電性金属酸化物との混合物又は積層物、無機導電性物質（ヨウ化銅、硫化銅等）、有機導電性材料（ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール等）及びこれとITOとの積層物等が挙げられる。

【0027】透明電極は印刷法、コーティング法等の湿式方法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方法、CVD法、プラズマCVD法等の化学的方法等によって熱可塑性基板上に形成することができる。形成方法は透明電極材料との適性を考慮して適宜選択すればよい。例えば、透明電極の材料としてITOを用いる場合には、直流又は高周波スパッタ法、真空蒸着法、イオンプレーティング法等を用いればよい。また透明電極の材料として有機導電性材料を用いる場合には、湿式製膜法を用いてよい。

【0028】透明電極のパターニングはフォトリソグラフィ等による化学的エッチング、レーザー等を用いた物理的エッチング等により行うことができる。また、マスクを用いた真空蒸着やスパッタリング、リフトオフ法、印刷法等によりパターニングしてもよい。

【0029】透明電極の形成位置は発光素子の用途及び目的に応じて適宜選択してよいが、熱可塑性基板上に形成するのが好ましい。このとき透明電極は基板の表面全体に形成しても一部のみに形成してもよい。

【0030】透明電極の厚みはその材料に応じて適宜選択すればよいが、通常10nm～50μmであり、好ましくは50nm～20μmである。透明電極の抵抗値は $10^3 \Omega/\square$ 以下とするのが好ましく、 $10^2 \Omega/\square$ 以下とするのがより好ましい。透明電極は無色透明であっても有色透明であってもよい。透明電極側から発光を取り出すためには、その透過率は60%以上とするのが好ましく、70%以上とするのがより好ましい。透過率は分光光度計を用いた公知の方法に従って測定することができる。

【0031】また、「透明導電膜の新展開」（沢田豊監修、シーエムシー刊、1999年）等に詳細に記載されている電極も本発明に適用できる。特に耐熱性の低いプラスチック基板を用いる場合は、透明電極材料としてITO又はIZOを使用し、150℃以下の低温で製膜するのが好ましい。

【0032】(B) 背面電極

通常、背面電極は有機化合物層に電子を注入する陰極としての機能を有するが、陽極として機能させることもでき、この場合上記透明電極を陰極として機能させる。以下、背面電極を陰極とする場合について説明する。

【0033】背面電極の形状、構造、大きさ等は特に制限されず、発光素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。背面電極を形成する材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物等を用いることができ、好ましくは仕事関数が4.5eV以下の材料を用いる。具体例としては、アルカリ金属（Li、Na、K、Cs等）、アルカリ土類金属（Mg、Ca等）、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金、リチウム-アルミニウム合金、マグネシウム-銀合金、インジウム、希土類金属（イッテルビウム等）等が挙げられる。これらは単独で使用してもよいが、安定性と電子注入性とを両立させるためには2種以上を併用するのが好ましい。これら材料の中で、電子注入性の観点からはアルカリ金属及びアルカリ土類金属が好ましく、保存安定性の観点からはアルミニウムを主体とする材料が好ましい。ここでアルミニウムを主体とする材料とは、アルミニウム単独、アルミニウムと0.01～10質量%のアルカリ金属又はアルカリ土類金属との合金又は混合物（リチウム-アルミニウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金等）を指す。背面電極の材料としては、特開平2-15595号、特開平5-121172号等に詳述されてい

るものも使用できる。

【0034】背面電極は印刷法、コーティング法等の湿式方法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方法、CVD法、プラズマCVD法等の化学的方法等によって形成することができる。形成方法は背面電極材料との適性を考慮して適宜選択すればよい。例えば、背面電極の材料として2種以上の金属等を用いる場合には、その材料を同時又は順次にスパッタして形成できる。

【0035】背面電極のパターニングはフォトリソグラフィ等による化学的エッチング、レーザー等を用いた物理的エッチング等により行うことができる。また、マスクを用いた真空蒸着やスパッタリング、リフトオフ法、印刷法等によりパターニングしてもよい。

【0036】背面電極の形成位置は発光素子の用途及び目的に応じて適宜選択してよいが、有機化合物層上に形成するのが好ましい。このとき背面電極は有機化合物層の表面全体に形成しても一部のみに形成してもよい。また、背面電極と有機化合物層との間にアルカリ金属又はアルカリ土類金属のフッ化物等からなる誘電体層を0.1～5nmの厚みで設置してもよい。誘電体層は真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等により形成することができる。

【0037】背面電極の厚みはその材料に応じて適宜選択すればよいが、通常10nm～5μmであり、好ましくは50nm～1μmである。背面電極は透明であっても不透明であってもよい。透明な背面電極は、上述した材料の層を1～10nmの厚みに薄く製膜し、更にITOやIZO等の透明導電性材料を積層して形成することができる。

【0038】(C) 発光層

本発明の発光素子において、発光層は少なくとも一種の発光材料を含有する。本発明で用いる発光材料は特に限定されず、蛍光発光性化合物であっても燐光発光性化合物であってもよい。また蛍光発光性化合物及び燐光発光性化合物を同時に用いてもよい。本発明においては、発光輝度及び発光効率の点から燐光発光性化合物を用いることが好ましい。

【0039】蛍光発光性化合物としては、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタリイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリリアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、金属錯体（8-キノリノール誘導体の金属錯体、希土類錯体等）、高分子発光材料（ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェ

ニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等)等が使用できる。これらは単独で用いても二種以上を混合して用いてもよい。

【0040】本発明で用いる燐光発光性化合物は、好ましくは三重項励起子から発光することができる化合物であり、オルトメタル化錯体及びポルフィリン錯体が好ましい。ポルフィリン錯体の中ではポルフィリン白金錯体が好ましい。燐光発光性化合物は単独で使用しても2種以上を併用してもよい。

【0041】本発明でいうオルトメタル化錯体とは、山本明夫著「有機金属化学 基礎と応用」、150頁及び232頁、裳華房社(1982年)、H. Yersin著「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」、71~77頁及び135~146頁、Springer-Verlag社(1987年)等に記載されている化合物群の総称である。オルトメタル化錯体を形成する配位子は特に限定されないが、2-フェニルピリジン誘導体、7,8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体又は2-フェニルキノリン誘導体であるのが好ましい。これら誘導体は置換基を有してもよい。また、これらのオルトメタル化錯体形成に必須の配位子以外に他の配位子を有していてもよい。オルトメタル化錯体を形成する中心金属としては、遷移金属であればいずれも使用可能であり、本発明ではロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム等を好ましく用いることができる。このようなオルトメタル化錯体を含む有機化合物層は、発光輝度及び発光効率に優れている。オルトメタル化錯体については、特願2000-254171号の段落番号0152~0180にもその具体例が記載されている。

【0042】本発明で用いるオルトメタル化錯体は、Inorg. Chem., 30, 1685, 1991, Inorg. Chem., 27, 3464, 1988, Inorg. Chem., 33, 545, 1994, Inorg. Chim. Acta, 181, 245, 1991, J. Organomet. Chem., 335, 293, 1987, J. Am. Chem. Soc., 107, 1431, 1985 等に記載の公知の手法で合成することができる。

【0043】発光層中の発光材料の含有量は特に制限されないが、例えば0.1~70質量%であり、1~20質量%であるのが好ましい。発光材料の含有量が0.1質量%未満であるか、又は70質量%を超えると、その効果が十分に発揮されない場合がある。

【0044】本発明において、発光層は必要に応じてホスト化合物、正孔輸送材料、電子輸送材料、電気的に不活性なポリマーバインダー等を含有してもよい。

【0045】上記ホスト化合物とは、その励起状態から蛍光発光性化合物又は燐光発光性化合物へエネルギー移動が起こり、その結果、該化合物を発光させる化合物である。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニ

レンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン化合物、ポルフィリン化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンベリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体、メタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾール等を配位子とする金属錯体、ポリシラン化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン共重合体、チオフエンオリゴマー、ポリチオフエン等の導電性高分子、ポリチオフエン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。ホスト化合物は1種単独で使用しても2種以上を併用してもよい。発光層におけるホスト化合物の含量は0~99.9質量%が好ましく、0~99.0質量%がより好ましい。

【0046】正孔輸送材料は陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、及び陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば特に限定されず、低分子材料であっても高分子材料であってもよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン化合物、ポルフィリン化合物、ポリシラン化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン共重合体、チオフエンオリゴマー、ポリチオフエン等の導電性高分子、ポリチオフエン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。これらは単独で使用しても2種以上を混合して使用してもよい。発光層における正孔輸送材料の含量は0~99.9質量%が好ましく、0~80質量%がより好ましい。

【0047】電子輸送材料は陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、及び陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば特に限定されず、例えばトリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘

導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体、メタロフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾール等を配位子とする金属錯体、アニリン共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が使用可能である。発光層における電子輸送材料の含量は0~99.9質量%が好ましく、0~80質量%がより好ましい。

【0048】ポリマーバインダーとしては、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリビニルブチラル、ポリビニルアセタール等が使用可能である。ポリマーバインダーを含有する発光層は、湿式製膜法によって、容易に且つ大面積に塗布形成することができる。

【0049】発光層の厚みは5~200nmとするのが好ましく、10~80nmとするのがより好ましい。厚みが200nmを超えると駆動電圧が上昇する場合があります、5nm未満であると発光素子が短絡する場合がある。

【0050】(D)その他

本発明の発光素子は、特開平7-85974号、同7-192866号、同8-22891号、同10-275682号、同10-106746号等に記載の保護層を有していてもよい。保護層は発光素子の最上面に形成する。ここで最上面とは、基板、透明電極、有機化合物層及び背面電極をこの順に積層する場合には背面電極の外側表面を指し、基板、背面電極、有機化合物層及び透明電極をこの順に積層する場合には透明電極の外側表面を指す。保護層の形状、大きさ、厚み等は特に限定されない。保護層をなす材料は、水分や酸素等の発光素子を劣化させ得るものが素子内に侵入又は透過するのを抑制する機能を有しているものであれば特に限定されず、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、酸化ゲルマニウム、二酸化ゲルマニウム等が使用できる。

【0051】保護層の形成方法は特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子線エピタキシ法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、コーティング法等が適用できる。

【0052】また、発光素子には水分や酸素の侵入を防止するための封止層を設けるのが好ましい。封止層を形成する材料としては、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとの共重合体、共重合主鎖に環状

構造を有する含フッ素共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリユリア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン又はジクロロジフルオロエチレンと他のコモノマーとの共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質、金属(In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等)、金属酸化物(MgO、SiO₂、SiO₂、Al₂O₃、GeO₂、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等)、金属フッ化物(MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等)、液状フッ素化炭素(パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等)、該液状フッ素化炭素に水分や酸素の吸着剤を分散させたもの等が使用可能である。

【0053】

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

【0054】実施例1

厚み0.2mmのポリエステルフィルム(帝人株式会社製「帝人テトロンフィルム」、軟化点:160℃)を2.5cm角に切断して熱可塑性基板を作製し、真空チャンバー内に導入した。この基板上にSiO₂ターゲットを用いてDCマグネトロンスパッタ(条件:基板温度100℃、酸素圧1×10⁻³Pa)により、SiO₂からなる厚み0.1μmのバリアー層を形成し、更にこのバリアー層上にZnO₂含有率が10質量%であるIZOターゲット(In₂O₃:ZnO=90:10(モル比))を用いて、DCマグネトロンスパッタ(条件:基板温度100℃、酸素圧1×10⁻³Pa)によりIZO透明電極を形成した。透明電極の厚みは0.2μmとし、その表面抵抗は10Ω/□であった。

【0055】透明電極を形成した基板を洗浄容器に入れIPA洗浄した後、UV-オゾン処理を30分間行った。続いてこの透明電極上にポリ(エチレンジオキシチオフェン)・ポリスチレンスルホン酸水分散物(BAYER社製、Baytron P:固形分1.3%)をスピンコートし、150℃で2時間真空乾燥して厚み100nmの正孔注入層を形成した。

【0056】次に、ポリビニルカルバゾール(Mw=63000、アルドリッチ製、正孔輸送材料兼ホスト材料)、トリリス(2-フェニルピリジン)イリジウム錯体(燐光発光材料)、及び2-(4-ビフェニル)-5-(4-*t*-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD、電子輸送材料)を40:1:12の質量比でジクロロエタンに溶解し、塗布液を調製した。

【0057】得られた塗布液をスピンコーターを用いて上記正孔注入層の上に塗布し、室温で乾燥して厚み100nmの有機化合物層を形成した。続いてこの有機化合物層上にパターンニングしたマスク(発光面積が5mm×5mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム及び銀(マグネシウム:銀=10:1(モル比))を0.25μm蒸着し、銀を0.3μm蒸着して背面電極を形成した。透明

電極及び背面電極からアルミニウムのリード線を結線し、発光積層体を窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、図1に示す発光素子のように、ニトフロンシート（日東電工製、軟化点：180℃）からなる熱可塑性封止部材を発光積層体の背面電極側に重ね、その周辺部を200℃で加熱し、熱可塑性基板と熱可塑性封止部材を熱融着して封止した。以上により、実施例1の発光素子を作成した。

【0058】実施例2

厚み0.5mmのポリカーボネートフィルム（帝人株式会社製「パンライトシート」、軟化点：180℃）を2.5cm角に切断して熱可塑性基板を作製し、真空チャンパー内に導入した。この基板の上にSiO₂ターゲットを用いてDCマグネトロンスパッタ（条件：基板温度100℃、酸素圧1×10⁻³Pa）により、SiO₂からなる厚み0.1μmのバリアー層を形成し、更にこのバリアー層上にZnO₂含有率が10質量%であるIZOターゲット（In₂O₃：ZnO=90：10（モル比））を用いて、DCマグネトロンスパッタ（条件：基板温度100℃、酸素圧1×10⁻³Pa）によりIZO透明電極を形成した。透明電極の厚みは0.2μmとし、その表面抵抗は10Ω/□であった。

【0059】透明電極を形成した基板を洗浄容器に入れIPA洗浄した後、UV-オゾン処理を30分間行った。続いてこの透明電極上にN,N'-ジナフチル-N,N'-ジフェニルベンシジンを1nm/秒の速度で真空蒸着し、厚み0.04μmの正孔輸送層を形成した。この正孔輸送層上に、燐光発光材料であるトリス(2-フェニルピリジル)イリジウム錯体、及びホスト材料である4,4'-N,N'-ジカルバゾールピフェニルをそれぞれ0.1nm/秒、1nm/秒の速度で共蒸着し、厚み0.024μmの発光層を得た。

【0060】次に、得られた発光層上に2,2',2''-(1,3,5-ベンゼントリイル)トリス[3-(2-メチルフェニル)-3H-

イミダゾ[4,5-b]ピリジン]を1nm/秒の速度で蒸着して、厚み0.024μmの電子輸送層を設けた。更に、この電子輸送層上に、バターニングしたマスク（発光面積が5mm×5mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム及び銀（マグネシウム：銀=10：1（モル比））を0.25μm蒸着し、銀を0.3μm蒸着して背面電極を形成した。透明電極及び背面電極からアルミニウムのリード線を結線し、発光積層体を形成した。この発光積層体を窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、図2に示す発光素子のように、ニトフロンシート（日東電工製、軟化点：180℃）からなる熱可塑性封止部材で発光積層体の全体を覆い、その周辺部を200℃に加熱し、熱可塑性基板と熱可塑性封止部材を熱融着して封止した。以上により、実施例2の発光素子を作成した。

【0061】比較例1

熱可塑性基板と熱可塑性封止部材を熱融着して封止したかわりに、封止剤として紫外線硬化型接着剤（長瀬チバ製「XNR5493」）を用いて封止したこと以外は実施例1と同様に、比較例1の発光素子を作成した。

【0062】発光輝度及び発光効率の評価

東洋テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、上記のように得られた各発光素子に直流電圧を印加して発光させ、その発光輝度を測定し、各発光素子の最高輝度L_{max}、最高輝度L₁₀₀が得られるときの電圧V_{max}、輝度200cd/m²で発光させたときの発光効率η₂₀₀、及び輝度2000cd/m²で発光させたときの発光効率η₂₀₀₀（外部量子効率）を求めた。また、各発光素子を85℃、95%RHの条件下で30日放置した後の最高輝度L_{max}、電圧V_{max}、並びに発光効率η₂₀₀及びη₂₀₀₀を求め、耐久性を評価した。結果を表1に示す。

【0063】

【表1】

		L _{max} (cd/m ²)	V _{max} (V)	η ₁₀₀ (%)	η ₁₀₀₀ (%)
実施例1	初期	57000	15	11.1	9.8
	30日後	52000	15	10.5	9.0
実施例2	初期	86000	13	16.4	14.7
	30日後	79000	13	15.0	13.1
比較例1	初期	48000	15	10.0	8.8
	30日後	38000	16	8.8	6.7

【0064】表1に示すように、接着剤を用いて封止した比較例1の発光素子は発光輝度及び発光効率に劣り耐久性も低かったのに対して、実施例1及び2の本発明の発光素子は優れた発光輝度、発光効率及び耐久性を示した。このことから、熱融着による封止方法は高温・高湿度条件下での耐久性を改善するために非常に有効であることが判る。さらに、発光素子の封止工程で紫外線硬化型接着剤を使用すると、接着剤の注入工程や紫外線照射工程等の複雑な工程が必要になるが、本発明の方法によ

れば、熱可塑性基板と熱可塑性封止部材を熱融着する工程のみでよいので、素子作成に関する作業効率が改善される。

【0065】

【発明の効果】以上詳述したように、熱融着により熱可塑性封止部材で有機化合物層を封止した本発明の発光素子は、発光輝度、発光効率及び耐久性に優れ、且つフレキシブルな素子として好適に使用できるために、フルカラーディスプレイ、バックライト等の面光源、プリンタ

一等の光源アレイ等に有効に利用できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】は本発明の発光素子の一実施形態を示す概略断面図である。

【図 2】は本発明の発光素子の一実施形態を示す概略断面図である。

【図 3】は本発明の発光素子の一実施形態を示す概略断面図である。

【符号の説明】

1・・・熱可塑性基板

2・・・透明電極

3・・・有機化合物層

4・・・背面電極

5・・・透明電極リード

6・・・背面電極リード

7・・・発光積層体

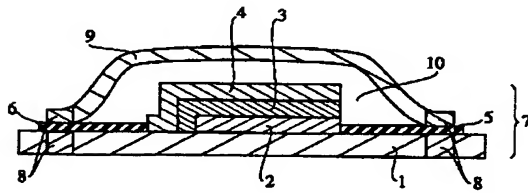
8・・・融着部

9・・・熱可塑性封止部材

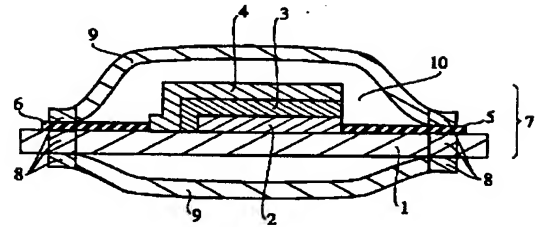
10・・・空間

10

【図 1】



【図 2】



【図 3】

